

特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

（法第12条、法施行規則第56条）
〔PCT36条及びPCT規則70〕

REC'D 16 MAR 2006

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 PF16Y25	今後の手続きについては、様式PCT/IPEA/416を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 2004/018823	国際出願日 (日.月.年) 16. 12. 2004	優先日 (日.月.年) 18. 12. 2003
国際特許分類 (IPC) Int.Cl. C22C49/14(2006.01), B22F3/14(2006.01), C22C47/14(2006.01), H01L23/373(2006.01)		
出願人 (氏名又は名称) 島根県		

- この報告書は、PCT35条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。
法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。
- この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 4 ページからなる。
- この報告には次の附属物件も添付されている。
 - ☒ 附属書類は全部で 7 ページである。
 - ☒ 補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面の用紙（PCT規則70.16及び実施細則第607号参照）
 - ☐ 第I欄4.及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙
 - ☐ 電子媒体は全部で (電子媒体の種類、数を示す)。
配列表に関する補充欄に示すように、電子形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。
(実施細則第802号参照)

4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。

- ☒ 第I欄 国際予備審査報告の基礎
- ☐ 第II欄 優先権
- ☒ 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- ☐ 第IV欄 発明の単一性の欠如
- ☒ 第V欄 PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- ☐ 第VI欄 ある種の引用文献
- ☐ 第VII欄 国際出願の不備
- ☐ 第VIII欄 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 13. 09. 2005	国際予備審査報告を作成した日 02. 03. 2006	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 井上 猛	4 K 9 2 6 9
電話番号 03-3581-1101 内線 3435		

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (2005年4月)

第 I 欄 報告の基礎

1. 言語に関し、この予備審査報告は以下のものを基礎とした。

- ☒ 出願時の言語による国際出願
☐ 出願時の言語から次の目的のための言語である _____ 語に翻訳された、この国際出願の翻訳文
☐ 国際調査 (PCT 規則 12.3(a) 及び 23.1(b))
☐ 国際公開 (PCT 規則 12.4(a))
☐ 国際予備審査 (PCT 規則 55.2(a) 又は 55.3(a))

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第 6 条 (PCT 14 条) の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1, 4-12 _____ ページ、出願時に提出されたもの
 第 2, 3, 13, 14 _____ ページ*, 2005.09.13 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ ページ*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 2-6, 11-13, 17, 18 _____ 項、出願時に提出されたもの
 第 _____ 項*, PCT 19 条の規定に基づき補正されたもの
 第 1, 19-24 _____ 項*, 2005.09.13 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ 項*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1-3 _____ ページ/図、出願時に提出されたもの
 第 _____ ページ/図*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの
 第 _____ ページ/図*, _____ 付けで国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 _____ ページ
☒ 請求の範囲 第 7-10, 14-16 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT 規則 70.2(c))

☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 第 _____ ページ/図
☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____
☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第Ⅲ欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解の不作成

次に関して、当該請求の範囲に記載されている発明の新規性、進歩性又は産業上の利用可能性につき、次の理由により審査しない。

☐ 国際出願全体

☒ 請求の範囲 1-6, 19-24

理由:

☐ この国際出願又は請求の範囲 _____ は、国際予備審査をすることを要しない
次の事項を内容としている（具体的に記載すること）。

☐ 明細書、請求の範囲若しくは図面（次に示す部分）又は請求の範囲 _____ の
記載が、不明確であるため、見解を示すことができない（具体的に記載すること）。

☐ 全部の請求の範囲又は請求の範囲 _____ が、明細書による十分な
裏付けを欠くため、見解を示すことができない（具体的に記載すること）。

☒ 請求の範囲 1-6, 19-24 _____ について、国際調査報告が作成されていない。

☐ 入手可能な配列表が存在せず、有意義な見解を示すことができなかった。
出願人は所定の期間内に、

☐ 実施細則の附属書Cに定める基準を満たす紙形式の配列表を提出しなかったため、国際予備審査機関は、認められた形式及び方法で配列表を入手することができなかった。

☐ 実施細則の附属書Cに定める基準を満たす電子形式の配列表を提出しなかったため、国際予備審査機関は、認められた形式及び方法で配列表を入手することができなかった。

☐ PCT規則13の3.1(a)又は(b)及び13の3.2に基づく命令に応じた、要求された配列表の遅延提出手数料を支払わなかった。

☐ 入手可能な配列表に関連するテーブルが存在しないため、有意義な見解を示すことができなかった。すなわち、出願人が、所定の期間内に、実施細則の附属書Cの2に定める技術的な要件を満たす電子形式のテーブルを提出しなかったため、国際予備審査機関は、認められた形式及び方法でテーブルを入手することができなかった。

☐ ヌクレオチド又はアミノ酸の配列表に関連するテーブルが電子形式のみで提出された場合において、当該テーブルが、実施細則の附属書Cの2に定める技術的な要件を満たしていない。

☐ 詳細については補充欄を参照すること。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、
それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	11-13, 17, 18	有
	請求の範囲		無
進歩性(IS)	請求の範囲		有
	請求の範囲	11-13, 17, 18	無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	11-13, 17, 18	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

文献1: JP 11-140559 A (古河電気工業株式会社)
1999.05.25
文献6: JP 50-140307 A (本田技研工業株式会社)
1975.11.11
文献7: JP 51-47508 A (本田技研工業株式会社)
1976.04.23
文献8: JP 44-17007 B (ジャパックス株式会社)
1969.07.28

請求の範囲11-13、17、18は、国際調査報告で引用した文献1(特許請求の範囲、実施例)、文献6(特許請求の範囲、第2頁右上欄第7-15行、実施例)、文献7(特許請求の範囲、第2頁左上欄13行-右上欄第1行、第3頁右下欄第3-8行)、文献8(特許請求の範囲、第2欄第11行-第3欄第7行、実施例、第7欄第1-6行)により進歩性を有しない。

文献6-8には、金属基炭素繊維複合材料の製造方法として、金属粉末と炭素繊維を混合し、加圧しながらパルス電流を通電させて焼結させることが記載されており、文献1に記載の複合材料を製造する際に、文献6-8に記載の製造方法を適用することに何ら困難性は認められない。

文献4参照)、または溶湯として用いる金属を合金化して溶湯の温度を低下させて溶湯含浸時の反応性を低下させること(特許文献5参照)が検討されてきている。

[0006] 特許文献1: 特開2002-194515号公報

特許文献2: 特開2001-300717号公報

特許文献3: 特開平05-125562号公報

特許文献4: 特開2000-303155号公報

特許文献5: 特開平11-256254号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0007] しかしながら、前述のように炭素繊維にコーティングを施す方法および炭素を主成分とするバインダーによってプレフォームを形成する方法は、追加の工程および材料などを必要とし、複合材料のコストの増大を招く可能性がある。また、溶湯として合金を用いる方法においては、該合金を準備する工程が必要となる。さらに、いずれの方法においても、マトリクスとして用いる金属ないし合金を溶湯とするために高温が必要であり、多くのエネルギーを必要とする。

[0008] これに対して、本発明は、一般的に用いられている安価な原材料を用い、より小さなエネルギーによって実施可能であると同時に、炭化物の生成を抑制する金属基炭素繊維複合材料の製造方法、および該方法によって製造される金属基炭素繊維複合材料を提供しようとするものである。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明の第1の実施形態である金属基炭素繊維複合材料は、金属と炭素繊維とを焼結させて得られる金属基炭素繊維複合材料であって、前記炭素繊維は前記複合材料の総質量を規準として10～80質量%含まれ、前記複合材料は理想密度の70%以上まで焼結されており、前記炭素繊維が材料の一端から他端まで連続して配列されていることを特徴とする。前記炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、気相成長炭素繊維、カーボンナノチューブ、およびナノチューブ・ナノファイバー撹合ワイヤーからなる群から選択されてもよい。前記金属は、銅、アルミニウム、マグネシウムおよびこれらを基とする合金からなる群から選択することができる。また、該金属基炭素繊維複合材料は、金属としてアルミニウムまたはそれを

基とする合金を用いる場合には好ましくは 2.6 g/cm^3 以下、金属として銅またはそれを基とする合金を用いる場合には好ましくは 6.8 g/cm^3 以下、金属としてマグネシウムまたはそれを基とする合金を用いる場合には好ましくは 2.1 g/cm^3 以下の密度を有する。好ましくは、炭素繊維は前記複合材料の総重量を基準として45～80質量%含まれる。その場合には、炭素繊維配列方向において 300 W/mK 以上の熱伝導率を有することが望ましい。上記のような金属基炭素繊維複合材料を半導体を用いた電子装置またはパワーモジュールの放熱部材（基板、ヒートシンク、ヒートスプレッドなど）として用いてもよい。

- [0010] 本発明の第2の実施形態である金属基炭素繊維複合材料の製造方法は、炭素繊維と金属の粉末とを物理的に混合して金属繊維混合物を得る工程1と、前記金属繊維混合物を配列させながら、治具中に充填する工程2と、前記治具を大気中、真空中または不活性雰囲気中に設置し、加圧しながら直接パルス電流を通電させ、それによる発熱で焼結をする工程3とを特徴とする。炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、気相成長炭素繊維、カーボンナノチューブ、およびナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーからなる群から選択されてもよい。金属は、銅、アルミニウム、マグネシウムおよびこれらを基とする合金からなる群から選択することができる。あるいはまた、炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維あるいはナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーと、気相成長炭素繊維またはカーボンナノチューブとの混合物であってもよい。さらに、工程2において、炭素繊維の方向を2次元的に制御することも可能である。^{6.10}（ここで、炭素繊維のうち、材料の一端から他端まで連続していないものの繊維長は $100 \text{ nm} \sim 5 \text{ mm}$ であり、工程1はボールミル等の物理的混合法を用いて実施されてもよい。あるいはまた、炭素繊維のうち、材料の一端から他端まで連続しているものの繊維長は複合材料寸法と同長であり、工程1は繊維方向を保持した物理的混合法によって実施されてもよい。

発明の効果

- [0011] 以上のような構成を採ることによって、半導体を用いた電子装置またはパワーモジュールの放熱部材（基板、ヒートシンク、ヒートスプレッドなど）として有用な、軽量で高熱伝導率を有する金属基炭素繊維複合材料を得ることができる。また、本発明の方

って、アルミニウム粉末が付着した炭素繊維束を得た。

[0042] 以上のようにして得られたアルミニウム粉末が付着した炭素繊維束を巻き解いて、20mmの長さに切断し、該繊維束を1方向に整列させた状態で、下部パンチおよびダイにより形成される20mm角の矩形状の凹部内に8g敷き詰めた。次に、装置内圧力を8Paとし、敷き詰めた繊維束の上に上部パンチを配置し、プランジャによって25MPaの圧力を印加した。そして、上部パンチおよび下部パンチに接続された電源を用いて、パルス幅0.01秒、電流密度 $5 \times 10^6 \text{ A/m}^2$ （最高）、電圧8V（最高）のパルス状電流を10分間にわたって通電して、アルミニウム粉末が付着した繊維束を焼結させ、金属基炭素繊維複合材料を得た。

[0043] 得られた金属基炭素繊維複合材料は、50%の炭素繊維含有量で、 2.3 g/cm^3 の密度（理想密度の95%）と400W/mKの熱伝導率を示した。

実施例 4

[0044] 本実施例は、連続繊維として取り扱うことのできる炭素繊維に対して銅粉末懸濁液を用いる懸濁液浸漬法を用いて調製した金属繊維混合物を、パルス通電焼結法によって焼結させた金属基炭素繊維複合材料を提供する。

[0045] 炭素繊維として、1000W/mKの熱伝導率を有する直径10 μm のピッチ系炭素繊維を用い、該繊維の6000本の束を巻出ボビンに巻きつけた。銅粉末として、1 μm 以下の厚さ、および30 μm の面方向の平均代表長さを有する薄片状粉末を用いた。2重量%（エタノールの重量を基準とする）の分散粘着剤（プルロニック（登録商標）F68）を含むエタノール中に、銅粉末を混合して金属粉末懸濁液を形成した。銅粉末の含有量は、懸濁液の重量を基準として60重量%であった。巻出ボビンから炭素繊維束を巻き解き、攪拌されている金属粉末懸濁液に浸漬し、大気中に引き上げ、温風乾燥（50℃）して、巻取ボビンに巻き取ることによって、銅粉末が付着した炭素繊維束を得た。

[0046] 以上のようにして得られた銅粉末が付着した炭素繊維束を巻き解いて、20mmの長さに切断し、該繊維束を1方向に整列させた状態で、下部パンチおよびダイにより形成される20mm角の矩形状の凹部内に12g敷き詰めた。次に、装置内圧力を10Paとし、敷き詰めた繊維束の上に上部パンチを配置し、プランジャによって2

5 MPa の圧力を印加した。そして、上部パンチおよび下部パンチに接続された電源を用いて、パルス幅 0. 0 1 秒、電流密度 $5 \times 10^6 \text{ A/m}^2$ (最高)、電圧 8 V (最高) のパルス状電流を 1 0 分間にわたって通電して、銅粉末が付着した繊維束を焼結させ、金属基炭素繊維複合材料を得た。

[0047] 得られた金属基炭素繊維複合材料は、3 0 % の炭素繊維含有量で、 $4. 5 \text{ g/cm}^3$ の密度 (理想密度の 9 7 %) と $5 5 0 \text{ W/mK}$ の熱伝導率を示した。

請求の範囲

- [1] (補正後) 金属と炭素繊維とを焼結させて得られる金属基炭素繊維複合材料であつて、前記炭素繊維は前記複合材料の総質量を規準として10～80質量%含まれ、前記複合材料は理想密度の70%以上まで焼結されており、前記炭素繊維が材料の一端から他端まで連続して配列されていることを特徴とする金属基炭素繊維複合材料。
- [2] 前記炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、気相成長炭素繊維、カーボンナノチューブ、およびナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーからなる群から選択されることを特徴とする請求項1に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [3] 前記金属は、銅、アルミニウム、マグネシウムおよびこれらを基とする合金からなる群から選択されることを特徴とする請求項1に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [4] 前記金属はアルミニウムまたはそれを基とする合金であり、 2.6 g/cm^3 以下の密度を有することを特徴とする請求項3に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [5] 前記金属は銅またはそれを基とする合金であり、 6.8 g/cm^3 以下の密度を有することを特徴とする請求項3に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [6] 前記金属はマグネシウムまたはそれを基とする合金であり、 2.1 g/cm^3 以下の密度を有することを特徴とする請求項3に記載の金属基炭素繊維複合材料。
- [7] (削除)
- [8] (削除)
- [9] (削除)
- [10] (削除)
- [11] 炭素繊維と金属の粉末とを物理的に混合して金属繊維混合物を得る工程1と、
前記金属繊維混合物を配列させながら、治具中に充填する工程2と、
前記治具を大気中、真空中または不活性雰囲気中に設置し、加圧しながら直接パルス電流を通電させ、それによる発熱で焼結をする工程3と
を特徴とする金属基炭素繊維複合材料の製造方法。
- [12] 前記炭素繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維、気相成長炭素繊維、カーボンナノチューブ、およびナノチューブ・ナノファイバー撚合ワイヤーからなる群か

ら選択されることを特徴とする請求項 1 1 に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。

[13] 前記金属は、銅、アルミニウム、マグネシウムおよびこれらを基とする合金からなる群から選択されることを特徴とする請求項 1 1 に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。

[14] (削除)

[15] (削除)

[16] (削除)

[17] 繊維は、ピッチ系炭素繊維、PAN系炭素繊維またはナノチューブ・ナノファイバ一撚合ワイヤーと、気相成長炭素繊維またはカーボンナノチューブとの混合物であることを特徴とする請求項 1 1 に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。

[18] 工程 2 において、前記炭素繊維の方向を 2 次元的に制御したことを特徴とする請求項 1 1 に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。

[19] (追加) 前記炭素繊維のうち、材料の一端から他端まで連続していないものの繊維長は 1 0 0 n m ~ 5 m m であり、前記工程 1 は、ボールミル等の物理的混合法を用いて実施されることを特徴とする請求項 1 1 に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。

[20] (追加) 前記炭素繊維のうち、材料の一端から他端まで連続しているものの繊維長は複合材料寸法と同長であり、前記工程 1 は繊維方向を保持した物理的混合法によって実施されることを特徴とする請求項 1 1 に記載の金属基炭素繊維複合材料の製造方法。

[21] (追加) 前記炭素繊維は前記複合材料の総質量を規準として 4 5 ~ 8 0 質量%含まれていることを特徴とする請求項 1 に記載の金属基炭素繊維複合材料。

[22] (追加) 炭素繊維配列方向において 3 0 0 W / m K 以上の熱伝導率を有することを特徴とする請求項 2 1 に記載の金属基炭素繊維複合材料。

[23] (追加) 請求項 1 ~ 6、2 1 または 2 2 のいずれかに記載の金属基炭素繊維複合材料を放熱部材として用いることを特徴とする半導体を用いた電子機器。

- [24] (追加) 請求項 1 ～ 6、21 または 22 のいずれかに記載の金属基炭素繊維複合材料を放熱部材として用いることを特徴とするパワーモジュール。